



TITLE:

8.クラスター近似法による結晶成長の動力学(北海道大学大学院理学研究科物理学専攻,修士論文題目・アブストラクト(1988年度))

AUTHOR(S):

内田, 尚志

CITATION:

内田, 尚志. 8.クラスター近似法による結晶成長の動力学(北海道大学大学院理学研究科物理学専攻,修士論文題目・アブストラクト(1988年度)). 物性研究 1989, 52(6): 690-691

ISSUE DATE:

1989-09-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/93752>

RIGHT:

8. クラスター近似法による結晶成長の動力学

内田 尚志

1次相転移の動力学の1つの例として、気相からの結晶成長を考える。結晶成長の動力学を扱うのに、適当な制限を設けた格子気体モデルがしばしば用いられる。格子気体モデルでは、与えられた結晶の対称性をもった格子を考え、各格子点は原子によって占められるか、占められないか（空孔）のどちらかの状態をとることができる。環境相と結晶の界面を単原子層として扱うときは2次元格子気体モデルが用いられ、界面が多原子層であることを考慮に入れる場合はSOSモデルが用いられる。SOSモデルは3次元格子気体モデルに“原子は原子の上にしかつくることができない”という条件をつけたものである。ここでは、この両方のモデルを用い、それに対してクラスター近似法の1つである経路確率法¹⁾を適用する。経路確率法では点近似（分子場近似）から出発して、系統的に複数の格子点の相関を取り込んでいくことができる。例えば、正方格子ならば、点近似、対近似（2体相関）、四角近似（4体相関）といった近似列を考えることができる。

格子気体モデルに基づき、クラスター近似法を用いた結晶成長の動力学の研究はTemkin²⁾に始まる。彼はSOSモデルに点近似を適用した。このときの問題点は駆動力 L （気相と結晶の化学ポテンシャルの差 $\Delta\mu$ を温度 kT で割った量）の小さい領域では、シミュレーションでは結晶が成長しているにもかかわらず、成長速度が零となることであった。その後 SaitoとMüller-Krumbhaar³⁾が対近似、Tsuchinaga⁴⁾がhexagonal systemで三角近似を行った結果、点→対→三角と扱うクラスターのサイズを大きくしていくにつれて、結晶の成長しない領域は小さくなることが見いだされ、駆動力の小さなところでは原子同士のつくるクラスターが重要な役割を果たすことが確認された。これらの研究では、温度範囲としては結晶表面が原子の熱運動のために荒れ始める温度（ラフニング温度）より少し高い温度領域を問題にしていた。それは、ゆらぎにより原子同士が大きなクラスターをつくることが重要となる低温側では、小さなクラスターしか考慮していないクラスター近似法は役に立たないとみなされていたからである。

そこで、本研究では、第1に、クラスターとして四角まで考慮することにより、ラフニング温度より低い温度領域で、2次元格子気体モデルを用い、結晶成長の動力学を扱うことを試みた。温度が低ければエネルギーの低い平坦な界面が実現し、界面を単原子層とみなすことができるからである。温度がラフニング温度より低いとき、界面は平らなため、結晶成長に寄与をするのは、熱的ゆらぎにより結晶表面上につくられた原子のクラスター（核）である。駆動力が小さいほど、境界でのエネルギー不利を補うために、成長に寄与する核のサイズは大きくなければならず、核生成に要する時間が長くなる。そのとき、成長速度 R は核生成率 I に比例し、駆動力 L に対して次のような依存性を示す。

$$R \propto I \propto \exp(-C/L) \quad (1) \quad (C \text{ は定数})$$

ここではクラスターとして四角まで考慮したとき、このような核生成的な振舞いが見られるかどうか注目した。また、第2に、単純立方格子の結晶成長の動力学をラフニング温度より高温側で扱った。高温では界面は多原子層になっているのでSOSモデルを用い、これに対して四角近似を適用した。その際、原子の表面拡散の効果も確かめた。拡散は成長速度を増大させる効果をもつ。それは、拡散により、原子は蒸発のしやすい位置から蒸発のしづらい位置へと移動するからである。

図1の数値計算結果は、四角近似の場合、核生成的な振舞い{(1)式}が見られることを示している。図2は高温側でのSOSモデルについての結果である。四角近似では、結晶の成長しない領域がかなり小さくなっている。また、拡散距離が長くなると成長速度が増大していることもわかる。

図1 成長速度Rの駆動力L依存性(2次元格子気体モデル)

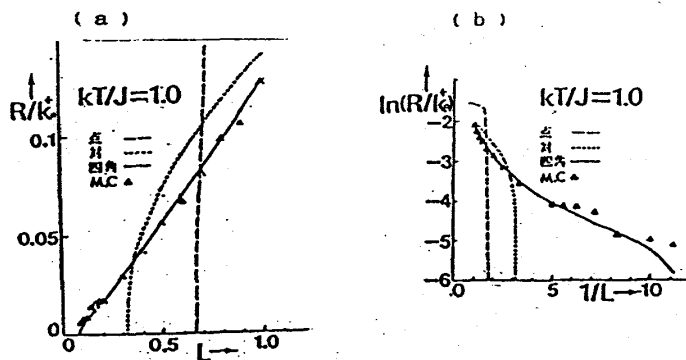
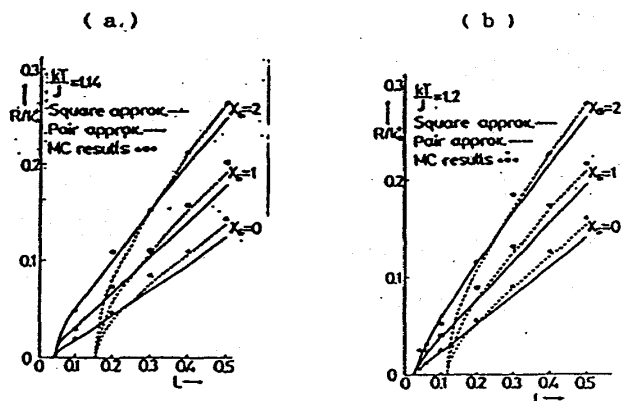


図2 成長速度Rの駆動力L依存性(SOSモデル)



X_s は格子点間距離を単位として測った拡散距離を表す。

References

- 1) R. Kikuchi : Prog.Theor.Phys.Suppl.35(1966)1.
- 2) D.E.Temkin : Sov.Phys.-Crystallogr.14(1969)344.
- 3) Y.Saito and H.Müller-Krumbhaar : J.Chem.Phys.70(1979)1078.
- 4) 土永浩之 : 1986年度修士論文